



República Federativa do Brasil
Ministério do Desenvolvimento, Indústria
e do Comércio Exterior
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(11) (21) **PI 0401502-9 A**



(22) Data de Depósito: 29/04/2004
(43) Data de Publicação: 20/12/2005
(RPI 1824)

(51) Int. Cl.⁷:
C08L 67/02
C08K 5/04

(54) Título: **COMPÓSITOS DE PET E CARGAS LIGNINOCELULÓSICAS, PROCESSOS PARA SUA PREPARAÇÃO E OBJETO MOLDADO CONTENDO TAL COMPÓSITO**

(71) Depositante(s): Universidade Federal do Rio de Janeiro - UFRJ (BR/RJ)

(72) Inventor(es): Marlon Sandro dos Santos, Marcos Lopes Dias

(74) Procurador: Alves, Vieira, Lopes & Atem Advogados

(57) Resumo: COMPOSITOS DE PET E CARGAS LIGNINOCELULÓSICAS, PROCESSOS PARA SUA PREPARAÇÃO E OBJETO MOLDADO CONTENDO TAL COMPÓSITO. A presente invenção trata da obtenção de um compósito a partir da mistura de politereftalato de etileno (PET) reciclado mecanicamente e cargas ligninocelulósicas, preferencialmente as cargas de coco, por meio de extrusão, onde foram variados a temperatura de processamento em extrusora, o tipo de carga de coco, velocidade de cisalhamento e teor da carga de coco, sendo que os compósitos apresentaram valores de módulo de young entre 1591 e 2244 MPa, de acordo com a ASTM D638-93. A presente invenção trata, ainda, do processo de peletização dos compósitos de PET reciclado e cargas ligninocelulósicas, preferencialmente cargas de coco, pós-extrusão e da obtenção de materias moldáveis por injeção desses compósitos.

Relatório Descritivo

COMPÓSITOS DE PET E CARGAS LIGNINOCELULÓSICAS, PROCESSOS PARA SUA PREPARAÇÃO E OBJETO MOLDADO CONTENDO TAL COMPÓSITO

5

Campo da Invenção

A presente invenção trata da obtenção de um compósito a partir da mistura de politereftalato de etileno (PET) reciclado mecanicamente e cargas ligninocelulósicas, preferencialmente as cargas de côco, por meio de extrusão, onde foram variados a temperatura de processamento em extrusora, o tipo de carga de côco, velocidade de cisalhamento e teor da carga de côco, sendo que os compósitos apresentaram valores de módulo de Young entre 1591 e 2244 MPa, de acordo com a ASTM D 638-93.

15

Antecedentes da Invenção

O estágio de desenvolvimento tecnológico da sociedade tem mostrado que, em um futuro próximo, haverá dificuldades extremamente acentuadas em consequência da degradação e destruição dos recursos naturais que são à base da sustentabilidade de seu sistema produtivo.

20

Discutir sobre o meio ambiente é cada vez mais necessário e desenvolver novas formas de atuação, no que se refere aos aspectos econômicos e empresariais, por meio de um eficaz sistema de gerenciamento ambiental é um ponto crucial.

25

A política de taxaço sobre produtos que gerem resíduos de difícil degradação vêm sendo adotada por alguns países desenvolvidos, que se mostram preocupados com a crescente produção de lixo não-reciclável e não-biodegradável. Esses países vêm promovendo incentivo aos produtos oriundos de fontes renováveis, biodegradáveis e recicláveis, o que mostra a importância do desenvolvimento de novas tecnologias que visem a diminuição do lixo sólido.

30

As garrafas de refrigerante feitas de PET, principal aplicação atual que se dá ao poliéster, apresentam um tempo de vida útil muito reduzido, sendo descartadas instantaneamente após seu uso. A consequência desse consumo é uma grande quantidade de resíduos e um aumento na poluição, o que torna a
5 reciclagem, não só de plásticos, mas de qualquer material, fundamentalmente importante nos âmbitos políticos, econômicos e ambientais.

O PET teve notável crescimento em sua produção nas últimas décadas, o que o torna um dos plásticos mais utilizados, havendo ainda uma grande expectativa de crescimento mundial em sua produção, algo em torno de
10 10% a.a. até 2004.

Questões econômicas e ambientais geraram grandes esforços no sentido de incrementar a reciclagem de PET nos últimos anos. Segundo a Associação Brasileira dos Fabricantes de Embalagens de PET (ABEPET), o grande problema da reciclagem ainda reside na coleta incipiente do material.
15 Contudo, a Associação Brasileira dos Fabricantes de Embalagens de PET (ABEPET) afirma que a reciclagem tem alcançado números satisfatórios, sendo que 40 mil toneladas de PET foram recicladas em 1998, 50 mil em 1999, e em 2001, 89 mil toneladas de PET foram recicladas. Porém, ainda está longe a resolução desse problema, uma vez que basicamente não se tem um descarte
20 adequado do material.

O lixo plástico domiciliar no Brasil ocupa em média 6% em peso dos resíduos sólidos urbanos, sendo composto principalmente por frascos, filmes e embalagens termoformadas ou expandidas. Cerca de 14% dos plásticos voltam ao mercado por meio das indústrias recicladoras, mas o que não é reciclado vai
25 para os depósitos de lixo.

O PET pode ser reciclado usando três diferentes formas. A primeira é a reciclagem energética, que queima o plástico e utiliza sua capacidade calorífica. Esse tipo de reciclagem é a menos vantajosa em termos de saldo de energia. A reciclagem química é o segundo tipo, onde o PET é sujeito a
30 reações que são opostas àquelas de polimerização, por exemplo hidrólise, para se obter algum produto intermediário como poliglicóis, ou monômeros como

ácido tereftálico (TPA), tereftalato de dimetila (DMT) e etileno glicol (EG). O PET pode ser posteriormente repolimerizado. A vantagem desse processo é que não há restrições para o uso do PET obtido, mas devido ao preço final da resina, que se torna mais cara que o PET virgem, o processo se torna economicamente inviável. A terceira e última forma de reciclagem é a mecânica, que é o método mais utilizado, consistindo em um processo simples e relativamente barato de coleta, separação, lavagem, trituração, secagem e reprocessamento dos flocos de PET.

O processo de reciclagem do PET apresenta algumas dificuldades, sendo que a principal é a queda de peso molecular, ocasionando uma diminuição na viscosidade e um aumento na cristalinidade, uma vez que os produtos reciclados são submetidos a vários processos degradativos, o que limita a aplicação do poliéster em determinados setores. Vários fatores podem influenciar a degradação do PET reciclado mecanicamente, entre eles lavagem e secagem dos flocos, exposição das garrafas às intempéries e presença de contaminantes.

O PET reciclado puro possui limitações em relação a sua potencial aplicabilidade, ora por normas que regulamentam sua reutilização, proibindo seu uso em embalagens para produtos alimentícios, ora por perda de suas propriedades, impossibilitando sua utilização na fabricação de materiais nobres.

O maior mercado para o PET reciclado no Brasil é destinado à produção de materiais que não requerem excelentes propriedades, tais como fibras para a fabricação de cordas (multifilamentos), fios de costura (monofilamentos), mantas não tecidas, carpetes e enchimentos de travesseiros, cerdas de vassouras e escovas. Outra parte é destinada à moldagem de autopeças, lâminas para termoformação (manequins) e garrafas de detergentes. Os enchimentos são produtos de baixo valor comercial, que podem ser feitos com PET de baixo peso molecular, tolerando ainda materiais coloridos e com baixa pureza.

Objetivando melhoras nas propriedades mecânicas do PET reciclado, ampliando assim o número de aplicações, pode-se preparar diversos compósitos com diferentes tipos de cargas dispersos na matriz do poliéster.

Um compósito polimérico é definido como a combinação de dois ou
5 mais componentes, cada qual permanecendo com suas características individuais em estrutura bifásica, onde a fase contínua ou matriz é representada pelo polímero e a fase dispersa, representada pelas cargas, que podem ser reforçantes ou não.

Os componentes exercem funções específicas no compósito,
10 dependendo de suas próprias características. As fibras, por exemplo, embora possuam alta resistência, não podem ser empregadas isoladamente para a obtenção de um composto moldado. É necessário que as fibras sejam envoltas por uma matriz contínua suficientemente rígida para manter a forma, evitando distorções e colapsos nas fibras.

15 As propriedades dos compósitos poliméricos são uma função das propriedades dos constituintes das fases, sendo a geometria da fase dispersa determinante para o compósito. Assim, concentração, forma, tamanho, distribuição e orientação das partículas dispersas na matriz são alguns dos fatores cruciais que influenciam diretamente as propriedades do compósito.

20 As cargas podem ser definidas como materiais sólidos, não solúveis, que são adicionadas aos polímeros em quantidades suficientes para diminuir os custos e/ou alterar suas propriedades físicas.

A adesão entre as fases de um compósito pode ser determinada de forma qualitativa, através da resistência tênsil do mesmo. Caso essa
25 propriedade seja superior à do polímero puro, significa que a matriz plástica transferiu parte das tensões para a fase dispersa. Essa adesão pode ser baixa ou alta e pode ocorrer através de atração eletrostática, ligação química, adesão mecânica e diversos outros mecanismos.

As fibras são as cargas mais eficazes para melhorar as propriedades
30 mecânicas de um polímero em virtude da elevada razão de aspecto que possuem (L/D). A presença de fibras restringe a deformação da matriz e faz

com que as solicitações recebidas sejam transferidas da matriz para as cargas através de tensões de cisalhamento na interface.

Entretanto, as propriedades dos compósitos que contém fibras dependem do comprimento e da adesão das mesmas com a matriz. A
5 resistência da interface assume grande importância. Geralmente, a fratura ocorre devido à quebra da interface e não de um dos componentes.

Os compósitos de PET reciclado e fibras de vidro apresentam pouca afinidade entre as fases, evidenciada por uma superfície de fratura onde são vistos buracos gerados pela extração mecânica das fibras de vidro (*pull out*)
10 presentes nos compósitos, o que ocasiona eventual perda nas propriedades mecânicas.

O requerente descobriu que a incorporação de materiais ligninocelulósicos, preferencialmente cargas de côco, como componente reforçante em compósitos poliméricos de PET reciclado através do processo de
15 extrusão, pode ser uma alternativa em relação àqueles que usam fibras sintéticas. As propriedades desses compósitos dependem, dentre outros, da adesão entre fibra e matriz.

As cargas vegetais possuem como principais componentes químicos a lignina e a celulose, sendo por isso chamadas de cargas ligninocelulósicas. As
20 fibras vegetais vêm sendo sistematicamente estudadas nos últimos anos devido às suas propriedades e à sua potencialidade na obtenção de compósitos, onde atuam conferindo reforço à matriz polimérica.

Existem vantagens em se utilizar fibras vegetais em substituição às fibras inorgânicas como fibra de vidro, podendo citar:

- 25 a) as fibras vegetais são materiais renováveis e sua disponibilidade é mais ou menos ilimitada;
- b) os preços das fibras vegetais são em geral inferiores às outras fibras sintéticas;
- c) a natureza abrasiva das fibras vegetais é muito inferior, quando
30 comparada, por exemplo, à fibra de vidro. Isso ocasiona vantagens

com relação à reciclagem de materiais e processamento de materiais poliméricos em geral;

Recentemente manifestou-se um crescente interesse em compósitos com cargas de côco, uma vez que propriedades como baixo custo, baixa
5 densidade, propriedades não abrasivas e biodegradabilidade são bastante atrativas em termos industriais.

O côco verde, fornece direta ou indiretamente mais de 100 produtos que podem ser utilizados pelo homem, destacando-se: a copra, o óleo, a torta de extração do óleo e a fibra. A fibra de côco é amplamente utilizada na
10 manufatura de cordas, tapetes e capachos, sendo de longa data seu uso na indústria automobilística, em estofamentos de bancos e encostos de cabeça.

As fibras de côco são materiais obtidos do mesocarpo de côcos (*cocos nucifera*), sendo consideradas mais duras que outras fibras naturais, fato atribuído ao alto teor de lignina. O Brasil produz cerca de 800 milhões de côcos
15 por ano e a maior parte vêm da região Nordeste. Na orla marítima da cidade do Rio de Janeiro são comercializados 200.000 côcos por semana. A produção mundial gira em torno de 5 milhões de toneladas por ano.

Objeto da Invenção

20 A presente invenção é caracterizada pela obtenção de compósitos de PET e/ou PET reciclado mecanicamente e cargas ligninocelulósicas, preferencialmente cargas de côco, obtidas em extrusora mono ou dupla rosca, utilizando a seguinte composição:

- 25 a) tipos diferentes de carga de côco, contendo comprimento médio entre 1mm a 15mm;
- b) teor de carga de côco variando de 1% a 50 % em peso.

A presente invenção trata de uma composição à base de PET mecanicamente reciclado e cargas ligninocelulósicas, preferencialmente cargas de côco, obtidas em extrusora mono ou dupla rosca, utilizando as seguintes
30 condições operacionais:

- a) alimentação manual ou automática do funil de alimentação da extrusora;
- b) temperaturas de processamento entre 100°C e 300°C;
- c) velocidade de cisalhamento entre 40 e 150 rotações por minuto (rpm).

5

A presente invenção é caracterizada, ainda, pela peletização do material extrusado, visando a injeção dos compósitos, utilizando as seguintes condições operacionais:

- a) alimentação manual ou automática do funil de alimentação da injetora;
- b) temperatura de injeção entre 230°C e 300°C;
- c) temperatura de resfriamento no molde da injetora entre 0°C e 50°C;
- d) tempo de resfriamento no molde entre 1 e 15 min.

10

15

A presente invenção é caracterizada pela obtenção de materiais injetados com propriedades tênses que permitem sua utilização como madeira plástica, fabricação de telhas, peças estruturais e outros artigos moldados.

20

A presente invenção proporciona a obtenção de compósitos que apresentam uma melhor compatibilidade entre as fases do que aqueles compostos por PET e/ou PET reciclado e fibras de vidro, devido a presença da lignina na composição da carga de côco, atuando como agente compatibilizante natural, permitindo uma melhor homogeneidade no material, resultando em melhores propriedades tênses.

25

Descrição Detalhada da Invenção

Em seguida são apresentados alguns exemplos da preparação dos compósitos de PET e/ou PET reciclado mecanicamente e cargas de côco, de acordo com a presente invenção.

30

Exemplo 1

O PET reciclado puro, assim como os compósitos de PET reciclado foram processados em extrusora de dupla rosca. Diferentes tipos de cargas de côco, uma particulada e outra fibrosa, contendo 1mm e 5mm de comprimento médio, respectivamente, foram avaliadas, utilizando temperaturas de processamento de 100°C, 220°C, 240°C e 250°C, velocidade de processamento igual a 100 rpm, e teores de cargas de côco de 5, 7 e 10% em peso.

Após a extrusão, os compósitos foram moídos e secos, sendo posteriormente injetados à 250°C, com temperatura de resfriamento da água no molde de 22°C e tempo de resfriamento do corpo de prova no molde de 1 minuto. Foram preparados corpos de prova do tipo IV para medidas de resistência à tração, segundo a norma ASTM D638-93, e ensaiados à temperatura de 22°C e umidade de 53%, com velocidade de separação entre as garras de 5mm/min e célula de 5KN. A distância entre as garras foi de 115mm. Os resultados obtidos pela presente invenção foram os seguintes:

Tabela 1

| | % de cargas particuladas no compósito | | | | % de fibras de côco no compósito | | |
|------------------------------|---------------------------------------|------|------|------|----------------------------------|------|------|
| | 0 | 5 | 7 | 10 | 5 | 7 | 10 |
| Módulo de Young (MPa) | 1967 | 2244 | 2070 | 1954 | 1637 | 1591 | 1974 |

Os resultados mostraram que os compósitos de PET reciclado preparados com cargas particuladas de côco, especialmente aquele que contém 5% em peso, apresentam melhores propriedades tênséis, devido à um melhor estado de dispersão das cargas na matriz polimérica.

Exemplo 2

Os compósitos de PET reciclado e cargas de côco do tipo particuladas foram processados em extrusora de dupla rosca com temperatura de

processamento de 250°C na última zona de aquecimento, velocidade de processamento igual a 100 rpm, e teor de 5% em peso de carga de côco.

Após a extrusão, os compósitos foram moídos e secos, sendo posteriormente injetados à 250°C, com temperatura de resfriamento da água no molde de 22°C e tempo de resfriamento do corpo de prova no molde de 1 minuto. Foram preparados corpos de prova do tipo IV para medidas de resistência à tração, segundo a norma ASTM D638-93, e ensaiados à temperatura de 22°C e umidade de 53%, com velocidade de separação entre as garras de 5mm/min e célula de 5KN. A distância entre as garras foi de 115mm. Os resultados obtidos pela presente invenção foram os seguintes:

Tabela 2

| | Compósito com 5% de cargas particuladas de côco | Compósito com 5% de fibras de vidro |
|----------------------------------|--|--|
| Módulo de Young (MPa) | 2244 | 2067 |

A resistência tênsil do compósito foi comparada com a de um compósito de PET reciclado e fibra de vidro, processado nas mesmas condições. O compósito de PET reciclado e 5% de carga particulada de côco possui um módulo 8,5% maior que PET reciclado com o mesmo teor de fibra de vidro, o que comprova a capacidade reforçante das cargas de côco. Os compósitos naturais apresentam maior módulo de Young devido a melhor compatibilidade entre os componentes.

Reivindicações

COMPÓSITOS DE PET E CARGAS LIGNINOCELULÓSICAS, PROCESSOS PARA SUA PREPARAÇÃO E OBJETO MOLDADO CONTENDO TAL COMPÓSITO

5

1) Compósitos caracterizados por serem formados a partir da mistura de PET e cargas ligninocelulósicas.

2) Compósitos, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo PET ser escolhido do grupo que compreende PET, PET reciclado e misturas
10 dos mesmos.

3) Compósitos, de acordo com a reivindicação 2, caracterizado pelo PET ser mecanicamente reciclado.

4) Compósito, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pela carga ligninocelulósica ser oriunda de partes de *cocus nucifera*.

15 5) Compósito, de acordo com a reivindicação 4, caracterizado pela carga ligninocelulósica ser fibra de *cocus nucifera*.

6) Compósito, de acordo com a reivindicação 5, caracterizado pela fibra possuir de 1 mm a 5 mm de comprimento.

7) Compósito, de acordo com as reivindicações 1 a 6, caracterizado
20 por possuir de 1% p/p a 50% p/p de carga ligninocelulósica.

8) Processo de preparação de um compósito caracterizado por compreender pelo menos uma etapa de extrusão.

9) Processo, de acordo com a reivindicação 8, caracterizado pela etapa de extrusão acontecer em uma extrusora mono- ou dupla-rosca.

25 10) Processo, de acordo com a reivindicação 8, caracterizado pela temperatura de processamento estar compreendida entre 100°C e 300°C.

11) Processo, de acordo com a reivindicação 8, caracterizado pela velocidade de cisalhamento estar compreendida entre 40 rpm e 150 rpm.

30 12) Processo, de acordo com a reivindicação 8, caracterizado por compreender uma etapa adicional de peletização.

13) Processo, de acordo com a reivindicação 12, caracterizado pela temperatura do injetor estar compreendida entre 230°C e 300°C.

14) Processo, de acordo com a reivindicação 12, caracterizado pela temperatura de resfriamento estar compreendida entre 0°C e 50°C.

5 15) Processo, de acordo com a reivindicação 12, caracterizado pelo tempo de resfriamento estar compreendido entre 1 min e 15 min.

16) Objeto moldado caracterizado por compreender um compósito de acordo com as reivindicações 1 a 7.

Resumo

COMPÓSITOS DE PET E CARGAS LIGNINOCELULÓSICAS, PROCESSOS PARA SUA PREPARAÇÃO E OBJETO MOLDADO CONTENDO TAL COMPÓSITO

5

A presente invenção trata da obtenção de um compósito a partir da mistura de politereftalato de etileno (PET) reciclado mecanicamente e cargas ligninocelulósicas, preferencialmente as cargas de coco, por meio de extrusão, onde foram variados a temperatura de processamento em extrusora, o tipo de carga de coco, velocidade de cisalhamento e teor da carga de coco, sendo que os compósitos apresentaram valores de módulo de Young entre 1591 e 2244 MPa, de acordo com a ASTM D 638-93.

15

A presente invenção trata, ainda, do processo de peletização dos compósitos de PET reciclado e cargas ligninocelulósicas, preferencialmente cargas de coco, pós-extrusão e da obtenção de materiais moldáveis por injeção desses compósitos.